[®] 公 開 特 許 公 報 (A) 昭64 - 13043

@Int.Cl.4

識別記号

庁内整理番号

❸公開 昭和64年(1989)1月17日

C 07 C 21/24 17/38

17/38 25/02 43/225 8619-4H

8619-4H A-7419-4H

-4H 審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

49発明の名称

ネオフィルハライド類の蒸留精製方法

②特 願 昭62-167940

愛出 願 昭62(1987)7月7日

砂発 明 者 浅

保

福岡県大牟田市平原町300番地

⑫発 明 者

梅 本 松 木

光政康増

福岡県大牟田市正山町86番地

砂発 明 者 松砂発 明 者 補

雅章

福岡県大牟田市黄金町2丁目13番地福岡県大牟田市平原町300番地

⑩出 顋 人 三井東圧化学株式会社

東京都千代田区霞が関3丁目2番5号

明細書

1. 発明の名称

ネオフィルハライド類の蒸留精製方法

- 2. 特許請求の範囲
- (1) 太(1)

(式(I)中、R1、R2は水素原子、ハロゲン原子 、低級アルキル基または低級アルコキシ基であ

り、K はハロゲン原子を示す。〕

で表されるネオフィルハライド類の蒸留精製に際 して、ヘキサメチレンテトラミン存在下で行うこ とを特徴とするネオフィルハライド類の蒸留精製 方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は式(1)

$$\begin{array}{c}
R_1 \\
CH_2 \\
CH_3
\end{array}$$
(1)

(式(1)中、R1、R2は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基または低級アルコキシ基であり、X はハロゲン原子を示す。)

で要されるネオフィルハライド類の分解抑制剤に 関し、詳しくは式 (I) のネオフィルハライド類 を蒸留精製するに際し、分解抑制剤としてヘキサ メチレンテトラミンの存在下で行う、ネオフィル ハライド類の蒸留精製法に関する。

最近、3-フェノキシベンジルエーテル系誘導体の或る種の化合物が極めて高い殺虫、殺ダニ活性を有することが知られており、魚類に対しても毒性が極めて低いことが知られている。

特に、この中でも下配式(月)で示される3-フェノキシベンジル 2-フェニル-2-メチルプロピルエーテル類は活性が極めて大きいことが提案されている。 (特別昭58-32840号、特別昭57-72928号、特別昭56-154427 号公報外)

(R₁、R₂は前記式(I)と同じ)

式(I) 化合物は、式(I) 化合物と3-フェノキシベンジルアルコールとの縮合反応により得られ、本発明に係る式(I) 化合物はその重要な中間体である。

〔従来の技術〕

従来、式(I) 化合物のネオフィルハライド類は、下式の反応

(1)
$$R_1$$
 $+$ CH_2 $+$ CH_3 酸

に従い得られているが、例えば(1)反応式のペンゼン類とメクリルハライド類とのアルキル化反応により得られた式(1)化合物中には未反応原料のペンゼン類などが相当量含まれており、いずれの方法にしる精製が必要であり、通常減圧蒸留により不鈍物が除去されている。

3

ら (W.H. Saunder, et. al.), ジャーナル オブザ アメリカン ケミカル ソサイエティ(J. Am. Chem. Soc.), 83, 882-885(1961) の2-フェニルー2-メチルプロピルクロライドのギ酸中でのギ酸ナトリュウムによるソルボリシスにより2, 2-ジメチルスチレンが生成するとの報告、あるいはジエイ、エッチ、ファインベルグ(J. H. Fainberg, et. al.) ら、ジャーナル オブ ザ アメリカン ケミカル ソサイエティ(J. Am. Chem. Soc.), 78, 2763-2767(1956) 等のネオフィル誘導体の転位反応に関する報告及び特別昭61-189235 公領などからも予想されることである。

特に 4 位にアルコキシ基を有するネオフィルハ ライド類は熱安定性が特に悪いためこの現象が大 もい

(発明が解決しようとする問題点)

このように式(1)化合物の高温下での処理は 厄介であり、また工業的に式(1)で示されるネ オフィルハライド類を精製する場合、酸分および 鉄分等の不純物含有量の少ない式(1)化合物を しかしながら、式(1)化合物のネオフィルハライド類は、一般に低温下では通常安定であるが、高温下で酸分や鉄分等の不純物質を含む状態では分解し、下式に示す様に例えばネオフィルグラインの場合は、脱塩化水素されてシクロプロパン型の中間体を経由し、転位反応を起こしてイソプテニル化合物へと変化する。

$$\begin{array}{c} R_1 \\ \vdots \\ C_1 \\ C_{1} \\ C_{1} \\ C_{1} \\ C_{1} \\ C_{1} \\ C_{2} \\ C_{3} \\ C_{4} \\ C_{5} \\ C_{1} \\ C_{1} \\ C_{2} \\ C_{3} \\ C_{4} \\ C_{5} \\ C_{4} \\ C_{5} \\ C_{4} \\ C_{5} \\ C_{4} \\ C_{5} \\ C_{6} \\ C_{6} \\ C_{7} \\ C_{8} \\$$

これは式(1)化合物のハロゲン原子がフェネチル位に結合しており、さらにベンジル位の炭素には2個のメチル基が存在しているため立体的に込み入っており、容易に脱ハロゲン化水繁されるためと推定される。

このことは、ダブリュウ、エッチ、サウンダー

4

得ることは非常に困難であり、しかも孫留塔等の 精製工程内の腐食により生じる酸化第2鉄部は低めて 塩化第2鉄の微量混入を避ける事は極めて難いい。 はたがって、式(1) で示されるホーマは、ルルライド類を表の他の要因によってなネオフィル、薬フィ 時の無やその他の要因によか、不安定な化第2、 ルハライド類が、酸化第2鉄部よび分解して酸か の触媒作用も加わって、かに特製して酸分 のとなが解別生物を生成する。そのために特製ネオ フィルハライド類の取率を非常に悪化すると同じ に、分解物が混入するために純度も大幅に低下 してしまう。

このようにネオフィルハライド類の蒸留時に用いる分解抑制剤を見出すことは、工業的に非常に 大きな課題である。

(問題を解決するための手段)

本発明者らは、式 (I) で示されるネオフィル ハライド類の分解抑制剤につき鋭度検討を重ねた 結果、ヘキサメチレンテトラミン (ウロトロピン) がネオフィルハライド類の蒸留精製に用いる分

the contract of the state of th

解抑制剤として極めて有効であることを見出し、 本発明を完成するに至った。

本発明に係わるヘキサメチレンテトラミンは容易に入手できる安価な取状脂肪族アミンであり、 脂肪族アミン類やアルキルアミドアルキルアミン 類は塩素化炭化水素の分解抑制剤として従来より 知られているものの、これらの化合物は本発明の ネオフィルハライド類に適用しても殆ど効果がない。

これに対し、本発明に係るヘキサメチレンを落 留積製に供される粗ネオフィルハライド類に対し 、微量添加するだけで分解抑制が充分発揮できる だけでなく、精製物中にも殆ど混入されることは なく、何ら影響を及ぼさない。

通常、その添加量は式(I)化合物の種類にも よるが、50~5,000 重量ppm 、好ましくは100 ~ 1,000 重量ppm で充分であり、これを蒸留前にネ オフィルハライド額に添加後、波圧下150~230 ℃ で、連続またはバッチ蒸留を行えばよい。 本発 明方法は、以下のネオフィルハライド類について

7

ピルクロライド及びブロマイド、2ーメチルー2 - (4ープロピルフェニル) プロピルクロライド 及びブロマイド、2ーメチルー2ー (4ークロル フェニル) プロピルクロライド及びプロマイド、 2ーメチルー2ー (3.4-ジクロルフェニル) プロ ピルクロライド及びブロマイド等が挙げられる。 (実 挺例)

以下実施例によって本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

実施例-1

300 配四ツロフラスコに o ークロロフェネトール159.2gを装入し、一10℃に保冷し、98%硫酸50gを加えた。この混合物をよくかきまぜた後、メタリルクロリド45.3gを同温度で2時間を要し滴下装入した。同温度で5時間かきまぜ、熱成反応した。反応液は水中(500 配)に排出し、油層と水暦を分離する。下層のオイルを温水で洗浄し脱水後、根製物192.2gを得た。この粗製物の中には、高速液体クロマトグラフィーによる分析の結果、oークロロフェネトールが37.4%および2ー(

適用される。

2 - 3 + n - 2 - (3 - 0 - n - 4 - x + + 0)フェニル) プロピルクロライド、2-メチルー2 - (4-エトキシフェニル)プロピルクロライド 、2-メチル-2-(3-エトキシフェニル)プ <u>タグプロマイド</u> ロピルクロライド、2ーメチルー2ー(3ーブロ ムー4-エトキシフェニル) プロピルクロライド 、 2 ーメチルー 2 ー (3 ークロルー 4 ーエトキシ フェニル) プロピルブロマイド、2-メチル-2 - (4-エトキシフェニル) プロピルプロマイド 、 2 - メチルー 2 - (3 - プロムー 4 - エトキシ フェニル)プロピルプロマイド、2ーメチルー2 - (3-クロルー4 - (n-プロポキシ) フェニ ル) プロピルクロライド、2-メチル-2-[3 ークロルー4 - (n-プロポキシ)フェニル)プ ロピルプロマイド、2-メチル-2-フェニルプ ロピルクロライド、2-メチル-2-フェニルブ ロビルプロマイド、2-メチル-2~(4-メチ ルフェニル) プロピルクロライド及びプロマイド 、2-メチルー2-(4-エチルフェニル)プロ

8

3~クロロー4ーエトキシフェニル)ー2ーメチルプロピルクロリドが55.6%含まれており、対メタリルクロライドの収率は86.5%であった。

この粗製物中に、工業的に実施する際に、混入すると予想される酸化第2 鉄を0.01g(50ppm 相当)を加え、更に安定化剤としてヘキサメチレンテトラミンを0.1g(500ppm 相当)加えた後、過剰に使用した未反応原料の o ークロロフェネトールを約10時間を要し、留出温度130~170 で/10mmlig、ボトム温度約190 でで留出させ、釜残分109.8gを得た。この釜残分の中には高速液体クロマトグラフィーによる内部標準法分析の結果、2ー(3.ークロロー4ーエトキシフェニル)ー2ーメチルプロピルクロリドが93.5%合まれており、通算の対メクリルクロライド収率は83.0%であった。従って、蒸留による特製収率は96.0%であった。

比較例-1

ヘキサメチレンテトラミンを添加しない以外は 、全く実施例-1と同様に、過剰に使用した。~ クロロフェネトールを留出温度130~170 ℃/10

1 0

mmHg、ボトム温度190 ℃で留出させ、盆残分を得たが、高速液体クロマトグラフィーによる分析の結果、2-(3-クロロー4-エトキシフェニル)-2-メチルプロビルクロリドは全く残存していなかった。

实施例-2

500 配の四ツ口フラスコに300gの2ーメチルー2 - (3ークロルー4ーエトキシフェニル)プロピルクロライドと酸化第2鉄0.03g およびヘキサメチレンテトラミン0.3gを装入し、190 でで25時間窒素気流下にて熱安定性テストを実施し、高速液体クロマトグラフィー内部標準法により分析を行い、2ーメチルー2ー(3ークロルー4ーエトキシフェニル)プロピルクロライドの残存率を求めた。

その結果、2-メチル-2-(3-クロル-4-エトキシフェニル)プロピルクロライドの残存率は97.5%であり、熱分解によって生じる2-クロル-4-イソプテニルエトキシベンゼンは極少量であった。

1 1

	化 合 物	残存率(%)
実施例 - 3	C.H.O ← C+CH.B7	95.4
- 4	C = H = O	96.2
- 5	C + H + O ← C + H + B r C + H + B r	94.7
- 6	© ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ; ;	98.5
- 7	CH3 ← CH3 CH3 CH3 CH3 ←	97.3
- 8	C₃H₁O- CH₃Br CH₃	93.9
- 9	C ℓ ← CH, C ℓ	98.0

実施例3~9

実施例-2と同様にして、2-メチル-2-(3 -クロル-4-エトキシフェニル)プロビルクロ ライドに変えて、種々のネオフィルハライド類の 熱安定性テストを実施した結果を下表に示しす。

(以下余白)

1 2

比較例 2~4

ヘキサメチレンテトラミンを使用しない以外は 実施例 - 2 と同様に熱安定性テストを実施した結 果を比較例として下表に示す。

	化 合 物	残存率(%)
比較例 - 2	C.8.0 ← CH.3 CH.3 CH.3	14.8
- 3	C:H:0 CH:Br C:H:Br	2.6
- 4	СН СН. С & СН СН. С &	40.0

特許出願人 三井東圧化学株式会社

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載 【部門区分】第3部門第2区分 【発行日】平成6年(1994)9月6日

【公開番号】特開平1-13043

【公開日】平成1年(1989)1月17日

【年通号数】公開特許公報1-131

【出願番号】特願昭62-167940

【国際特許分類第5版】

C07C 22/04

9280-4H

17/38

25/02

9280-4H

43/225

C 7419-4H

手統補正書(1発)

平成5年6月25日

特許庁長官 麻 生 渡 殿

1. 事件の表示

昭和62年特許顧第187940号

2.発明の名称

ネオフィルハライド類の蒸留精製方法

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

名称 (312) 三井東圧化学株式会社

代表者 択 村 治 夫

電話 03-3592-4394

4. 補正により増加する発明の数

5. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の標

6. 補正の内容

別紙のとおり。

別紙 訂正明細音

1. 発明の名称

ネオフィルハライド類の惑留精製方法

- 2. 特許請求の範囲
- (1) 式(1)

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & CH_4 \\
C - CH_4 X & CH_6
\end{array}$$

(式(I)中、Ri、Riは水素原子、ハロゲン原子 、低級アルキル基または低級アルコキシ基であ

り、X はハロゲン原子を示す。)

で表されるネオフィルハライド類の蒸留精製に際 して、ヘキサメチレンテトラミン存在下で行うこ とを特徴とするネオフィルハライド類の蒸留精製 方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は式(I)

[式 (]) 中、 R_1 、 R_2 は水煮原子、ハロゲン原子 、低級アルキル基または低級アルコキシ基であ り、X はハロゲン原子を示す。〕

で表されるネオフィルハライド類の分解抑制剤に関し、詳しくは式 (1) のネオフィルハライド類を蒸留精製するに際し、分解抑制剤としてのヘキサメチレンテトラミンの存在下で行う、ネオフィルハライド類の蒸留精製法に関する。

最近、8-フェノキシベンジルエーテル系誘導 体の或る種の化合物が極めて高い殺虫、殺ダニ活 性を有し、魚類に対しても毒性が極めて低いこと が知られている。

特に、この中でも下配式 (II) で示される 3 ーフェノキシベンジル 2 ーフェニルー 2 ーメチルプロピルエーテル類は活性が極めて大きく、それ故殺虫、殺ダニ剤として利用価値の高い化合物であることが開示されている。 (特開昭58-32840号、特開昭57-72928号、特開昭56-154427 号公報他)

しかしながら、式(I) 化合物のネオフィルハライド類は、一般に低温下では通常安定であるが、高温下で酸分や鉄分等の不純物質を含む状態では分解し、下式に示す機に例えばネオフィルクロリド類の場合は、脱塩化水素されてシクロプロパン型の中間体を経由し、転位反応を起こしてイソプテニル化合物へと変化する。

$$\begin{array}{c|c} R_1 & CH_1 \\ C & CH_2 C \ell \end{array} \longrightarrow \begin{array}{c} R_1 & CH_2 \\ \hline C & CH_3 C \ell \end{array} \longrightarrow \begin{array}{c} R_1 & CH_4 \\ \hline CH_4 & CH_5 \end{array} + HC \ell \ell \\ \end{array}$$

これは式(I)化合物のハロゲン原子がフェネ チル位に結合しており、さらにベンジル位の炭素 には2個のメチル器が存在しているため立体的に 混み合っており、容易に脱ハロゲン化水素される ためと推定される。

このことは、ダブリュウ、エッチ、サウンダー

(R₁、R₂は前配式 (I) と同じ)

式(I) 化合物は、式(I) 化合物と3-フェ ノキシベンジルアルコールとの縮合反応により得 られ、本発明に保る式(I) 化合物はその重要な 中間体である。

〔従来の技術〕

従来、式 (I) 化合物のネオフィルハライド類は、下記の反応

に従い得られているが、例えば反応式(I)のベンゼン類とメタリルハライド類とのアルキル化反応により得られた式(I)化合物中には未反応原料のベンゼン類などが相当量含まれており、いずれの方法にしる物製が必要であり、通常線圧蒸留により不納物が除去されている。

ら (W. H. Saunder, et. al.), ジャーナル オブザ アメリカン ケミカル ソサイエティ(J. Am. Chen. Soc.), 83, 882-885(1981) の 2 ーフェニルー2 ーメチルプロピルクロリドのギ酸中でのギ酸ナトリウムによるソルボリシスにより2, 2-ジメチルスチレンが生成するとの報告、あるいはジエイ、エッチ、ファインベルグ(J. H. Painberg, et. al.) ら、ジャーナル オブ ザ アメリカン ケミカル ソサイエティ(J. Am. Chen. Soc.), 78, 2763-2767(1956) 等のネオフィル誘導体の転位反応に関する報告及び特開昭 61-189235 公報などからも予想されることである。

特に4位にアルコキシ基を有するネオフィルハ ライド類は熱安定性が特に悪いためこの現象が起 こり易い。

(発明が解決しようとする問題点)

このように式(1) 化合物の高温下での処理は 厄介であり、また工業的に式(I) で示されるネ オフィルハライド類を精製する場合、酸分および 飲分等の不純物含有量の少ない式(I) 化合物を 得ることは非常に困難であり、しかも蒸留塔等の精製工程内の腐食により生じる酸化第2鉄および塩化第2鉄の数量混入を避ける事は極めて難しい。したかって、式(I)で示されるネネフィルハライド類を窓留により精製するにあたっては、素留時の熱やその他の要因により、不安定なネオフィルハライド類が、酸化第2鉄および塩化第2鉄等の触媒作用も加わって、加速度的に分解して酸分及び分解副生物を生成する。そのために精製ネオフィルハライド類の収率を非常に悪化すると同時に、分解物が混入するために純度も大幅に低下してしまう。

このようにネオフィルハライド類の悪留時に用いる分解抑制剤を見出すことは、工業的に非常に 大きな課題である。

(問題を解決するための手段)

本発明者らは、式(I)で示されるネオフィル ハライド類の分解抑制剤につき鋭電検討を取ねた 結果、ヘキサメチレンテトラミン(ウロトロピン)がネオフィルハライド類の孫留精製に用いる分

て避用される。

2-メチル-2-(8-クロロー4-エトキシ フェニル) プロピルクロリド、2-メチル-2-(4-エトキシフェニル) プロピルクロリド、2 - メチルー2-(8-エトキシフェニル)プロビ ルクロリド及びプロミド、2-メチルー2-(3 ープロモー4-エトキシフェニル) プロピルクロ リド、2-メチルー2-(3-クロロー4-エト キシフェニル) プロピルプロミド、2-メチル-2-(4-エトキシフェニル) プロピルプロミド 、2-メチル-2-(3-プロモ-4-エトキシ フェニル) プロピルプロミド、2-メチル-2-(8-クロロー4-(n-プロポキシ) フェニル) プロピルクロリド、2-メチル-2- (8-ク ロロー4-(n-プロポキシ)フェニル)プロビ ルプロミド、、2-メチル-2-フェニルプロピ ルクロリド、2-メチル-2-フェニルプロピル プロミド、2-メチル-2-(4-メチルフェニ ル) プロピルクロリド及びプロミド、2-メチル -2-(4-エチルフェニル)プロビルクロリド

解抑制剤として極めて有効であることを見出し、 本発明を完成するに至った。

脂肪族アミン類やアルキルアミドアルキルアミン類は塩素化炭化水素の分解抑制剤として従来より知られているものの、これらの化合物は本発明のネオフィルハライド類に適用しても殆ど効果がない。

これに対し、本発明に係るヘキサメチレンテト ラミンを蒸留箱製に供される租ネオフィルハライ ド類に対し、微量添加するだけで分解抑制が充分 発揮できるだけでなく、精製物中にも殆ど混入さ れることはなく、何ら悪影響を及ぼさない。しか も、安価で、容易に入手可能である。

通常、その添加量は式(I)化合物の種類にもよるが、50~5,000 重量ppm、好ましくは100 ~ 1,000 重量ppm で充分であり、これを蒸留前に租ネオフィルハライド類に添加後、連続またはバッチ蒸留を行えばよい。その際の蒸留温度は、減圧度等によるが、通常 120℃~ 200℃の範囲である。本発明方法は以下のネオフィルハライド類につい

及びプロミド、2-メチル-2-(4-プロビルフェニル)プロビルクロリド及びプロミド、2-メチル-2-(4-クロロフェニル)プロビルクロリド及びプロミド、2-メチル-2-(3, 4-ジクロロフェニル)プロビルクロリド及びプロミド等が挙げられる。

(実施例)

以下実施例によって本発明を具体的に説明する か、本発明はこれらの実施例に限定されるもので はない。

奥施例-1

300 m/四ツロフラスコに 2 ークロロエトキシベンゼン159.2gを築入し、一10℃に保冷し、98%確酸50gを加えた。この混合物をよくかきまぜた後、メタリルクロリド45.3gを同温度で 2 時間を娶し滴下接入した。同温度で 5 時間かきまぜ、熟成反応した。反応液は水中(500 m/)に排出し、油層と水層を分離する。油層を温水で洗浄し脱水後、粗製物192.2gを得た。この粗裂物の中には、高速液体クロマトグラフィーによる分析の結果、 o

-クロロフェネトールが37.4%および2-(3-クロロ-4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピルクロリドが55.6%含まれており、対メタリルクロリドの収率は86.5%であった。

この担製物中に、工業的に実施する際に、混入すると予想される酸化第2鉄を0.01g(50ppm 相当)を加え、更に安定化剤としてヘキサメチレンテトラミンを0.1g(500ppm 相当)加えた後、過剰に使用した未反応原料の0-クロロフェネトールを約10時間を要し、留出温度130~170℃/10mmHg、ボトム温度約190℃で留出させ、差残分109.8gを得た。この差残分の中には高速液体クロマトグラフィーによる内部標準法分析の結果、2-(3-クロロー4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピルクロリドが93.5%含まれており、通算の対メタリルクロリド収率は83.0%であった。使って、蒸留による精製収率は96.0%であった。

比較例-1

ヘキサメチレンテトラミンを添加しない以外は 、全く実施例-1と同様に、過剰に使用したo-

であった。

实施例3~B

実施例-2と同様にして、2-メチル-2-(8-クロロ-4-エトキシフェニル)プロピルクロリドに代えて、種々のネオフィルハライド類の熱安定性テストを実施した結果を次頁の第1 扱に示す。

(以下余白)

クロロフェネトールを留出温度180 ~170 ℃/10 mmHg、ボトム温度190 ℃で留出させ、釜残分を得たが、高速液体クロマトグラフィーによる分析の結果、2-(3-クロロー4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピルクロリドは全く残存していなかった。

実施例-2

500 mdの四ツロフラスコに300gの 2 - メチルー2 - (3 - クロロー4 - エトキシフェニル) プロピルクロリドと酸化第 2 鉄0.03g およびヘキサメチレンテトラミン0.3gを殺入し、190 ℃で25時間密紊気流下にて熱安定性テストを実施し、高速液体クロマトグラフィー内部標準法により分析を行い、2 - メチルー2 - (8 - クロロー4 - エトキシフェニル) プロピルクロリドの残存率を求めた

その結果、2-メチル-2-(8-クロロ-4-エトキシフェニル)プロピルクロリドの残存率は97.5%であり、熱分解によって生じる2-クロロ-4-イソプテニルエトキシペンゼンは極少量

第1表

	化合物	茂存率(%)
実施例 - 3	C.H.O.CH.Br CH.	95. 4
- 4	CaHaO-O-CHaC &	98. 2
- 5	C₃H₅O-(○)-CH₃Br CH₃	94. 7
- 6	CH ₀ C-CH ₂ C & CH ₀	98. 5
- 7	CH⟨○⟩- CH. C & CH.	97.3
- 8	C.H.O(○)-(CH.Br CH.Br	93. 9
- 9	C & - CH & CH & C &	98.0

比較例2~4

へキサメチレンテトラミンを使用しない以外は 実施例-2、3、7と同様に熱安定性テストを実 施した結果を比較例-2、3、4として第2後に 示す。

第2表

	化合物	残存率(%)
比較例 - 2	Caheo Chace	14.8
- 8	C₃H∗O-Ó-CH₃Br C₃H∗O-Ó-CH₃Br	2. 6
- 4	CH.	40. 0

特許出願人 三井東圧化学株式会社

手続補正書(方式)

平成6年2月28日

特許庁長官 麻生 液 政

1. 事件の表示

昭和82年特許顧167940号

2. 発明の名称

ネオフィルハライド類の篠留精製方法

3. 楠正をする者

事件との関係 特許出個人

住所 東京都千代田区麓が関三丁目2番5号 名称(312) 三井東圧化学株式会社

代表看 佐 田 杉 夫

 補正命令の日付 平成6年2月8日(発送)

5. 補正の対象

平成6年6月25日付提出の手続補正書の補正の内容の個

6. 補正の内容

「別紙のとおり」とあるのを「別紙のとおり(補正の対象の側に記載した事項以外は変更なし)」と打正する。



